

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-077560

(43)Date of publication of application : 25.03.1997

(51)Int.Cl.

C04B 35/584

C04B 35/64

(21)Application number : 07-259234

(71)Applicant : ISUZU CERAMICS KENKYUSHO:KK

(22)Date of filing : 12.09.1995

(72)Inventor : SO BUNKOU

(54) HOMOGENEOUS SILICON NITRIDE SINTERED COMPACT AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To produce a silicon nitride sintered compact almost free from pores in the surface layer part and excellent in mechanical strength by coating the surface of a compact of a mixture of silicon nitride powder with a powdery sintering aid with a specified powdery mixture based on silicon nitride and sintering the coated compact.

SOLUTION: A mixture prepd. by adding a powdery sintering aid to silicon nitride powder is compacted, the surface of the resultant compact is coated with a powdery mixture of silicon nitride as a base with a sintering aid and a material less liable to sinter at the sintering temp. of silicon nitride, and the coated compact is sintered. At this time, Y₂O₃ and Al₂O₃ are used as the sintering aid for silicon nitride and SiC, B₄C, C, nitride carbide or boride of at least one among Ta, Zr, W and Hf is used as the material less liable to sinter at the sintering temp. of silicon nitride. The surface of the compact is coated with a powdery mixture of 50-90 parts silicon nitride with 0.5-10 parts sintering aid and 10-40 parts material less liable to sinter at the sintering temp. of silicon nitride and the coated compact is sintered at 1,700-1,900° C under 8-10atm.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 9 - 7 7 5 6 0

(43) 公開日 平成 9 年 (1997) 3 月 2 5 日

(51) Int. Cl. ⁶

C04B 35/584

35/64

識別記号

庁内整理番号

F I

C04B 35/58

35/64

102

T

B

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 6 F D (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平 7 - 2 5 9 2 3 4

(22) 出願日 平成 7 年 (1995) 9 月 1 2 日

(71) 出願人 0 0 0 1 2 5 9 3 4

株式会社いすゞセラミックス研究所

神奈川県藤沢市土棚 8 番地

(72) 発明者 曾 文 甲

神奈川県藤沢市土棚 8 番地

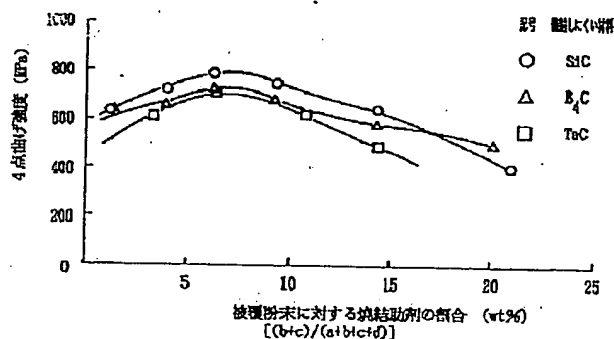
(74) 代理人 弁理士 山本 俊夫

(54) 【発明の名称】 均質窒化ケイ素焼結体とその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 表層部の気孔が少なく、機械的強度に優れた均質窒化ケイ素焼結体を得る。

【解決手段】 窒化ケイ素に焼結助剤として酸化イットリウムとアルミナを添加した混合物から成形体を成形し、該成形体の表面に、窒化ケイ素 50～90 部と、焼結助剤 0.5～10 部と、窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料 10～40 部とからなるセラミックス混合粉末を被覆し、温度 1700～1900℃、圧力 8～10 atm. の窒素ガスを含む雰囲気中で焼結する。窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料には、炭化ケイ素と、炭化ホウ素と、炭素と、タンタル、ジルコニウム、タングステン、ハフニウムからなる群から選択された少なくとも 1 種の窒化物、炭化物またはホウ化物の内のいずれかを用いる。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 窒化ケイ素粉末に窒化ケイ素の焼結助剤粉末を添加した混合物から成形体を成形し、窒化ケイ素を主成分とし窒化ケイ素の焼結助剤と窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料とを混合した粉末を前記成形体の表面に被覆して焼結したことを特徴とする、均質窒化ケイ素焼結体。

【請求項 2】 窒化ケイ素粉末に窒化ケイ素の焼結助剤粉末を添加した混合物から成形体を成形し、窒化ケイ素を主成分とし窒化ケイ素の焼結助剤と窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料とを混合した被覆粉末を前記成形体の表面に塗布して焼結してなる均質窒化ケイ素焼結体であつて、焼成面から深さ 0 ~ 200 μ m の表層部は、該表層部に含まれる気孔の内径が 5 ~ 50 μ m であり、200 \times 200 μ m の 2 次元範囲を縦横 20 個に分割したセルに占める気孔面積の平均的割合が 15 % 以下であることを特徴とする、均質窒化ケイ素焼結体。

【請求項 3】 前記窒化ケイ素の焼結助剤は酸化イットリウム (Y_2O_3) とアルミナ (Al_2O_3) であり、前記窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料は、炭化ケイ素 (SiC) と、炭化ホウ素 (B₄C) と、炭素 (C) と、タンタル (Ta)、ジルコニウム (Zr)、タングステン (W)、ハフニウム (Hf) の内の少なくとも 1 種の窒化物、炭化物またはホウ化物とのいずれかである、請求項 1、2 の何れかに記載の均質窒化ケイ素焼結体。

【請求項 4】 窒化ケイ素を主成分とする成形体の表面に、窒化ケイ素と窒化ケイ素の焼結助剤と窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料とを混合してなる被覆粉末を被覆した後に焼成することを特徴とする、均質窒化ケイ素焼結体の製造方法。

【請求項 5】 前記窒化ケイ素の焼結助剤は酸化イットリウム (Y_2O_3) とアルミナ (Al_2O_3) であり、前記窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料は、炭化ケイ素 (SiC) と、炭化ホウ素 (B₄C) と、炭素 (C) と、タンタル (Ta)、ジルコニウム (Zr)、タングステン (W)、ハフニウム (Hf) の内の少なくとも 1 種の窒化物、炭化物またはホウ化物とのいずれかである、請求項 4 に記載の均質窒化ケイ素焼結体の製造方法。

【請求項 6】 窒化ケイ素 50 ~ 90 部と、窒化ケイ素の焼結助剤 0.5 ~ 10 部と、窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料 10 ~ 40 部とからなるセラミックス混合粉末を、窒化ケイ素を主成分とする成形体の表面に被覆し、温度 1700 ~ 1900 $^{\circ}$ C、圧力 8 ~ 10 at m. の窒素ガスを含む雰囲気中で焼結することを特徴とする、均質窒化ケイ素焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は表層部が緻密で強度に優れた均質窒化ケイ素焼結体とその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 一般に、窒化ケイ素の成形体は、焼成中に窒化ケイ素の分解や成形体の表面付近からの焼結助剤の蒸散により、表層部が強度の低い焼結変質層になつていているために、強度の安定化が阻害されるという問題がある。

【0003】 特開平 7 - 41367 号公報に開示される窒化ケイ素焼結体では、焼成時の窒化ケイ素と焼結助剤成分との反応による分解を抑制するために、 SiO と RE_2O_3 (RE は周期律表 3 A 族元素) を含む窒素雰囲気中で焼成している。また、特開平 6 - 345536 号公報に開示される窒化ケイ素焼結体では、成形体を窒化ケイ素粉末中に埋設した状態で焼結することにより、窒化ケイ素焼結体の表面の硬度を高め、良好な寸法精度を得るようにしている。

【0004】 焼成時の雰囲気制御することは、表層部の焼結変質層を抑制する効果を奏するが、窒化ケイ素の柱状粒子が窒化ケイ素焼結体の表面に突出し、また窒化ケイ素焼結体の表面に孔径数十 ~ 数百 μ m の気孔が多数存在し、この気孔が破壊の起点になるなど、焼成面の強度が実用の域に達していないのが現状である。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の課題は上述の問題に鑑み、表層部の気孔が少なく、機械的強度に優れた均質窒化ケイ素焼結体を得ることにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決するために、本発明は窒化ケイ素粉末に窒化ケイ素の焼結助剤粉末を添加した混合物から成形体を成形し、窒化ケイ素を主成分とし窒化ケイ素の焼結助剤と窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料とを混合した粉末を前記成形体の表面に被覆して焼結したことを特徴とする。

【0007】

【発明の実施の形態】 本発明は窒化ケイ素を主成分とする成形体の表面に、窒化ケイ素と焼結助剤と窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料とを混合してなる被覆粉末を塗布ないし被覆したうえ焼成することを特徴とする。

【0008】 窒化ケイ素の焼結助剤には酸化イットリウム (Y_2O_3) とアルミナ (Al_2O_3) とを用いる。窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい粉末材料には、炭化ケイ素 (SiC) と、炭化ホウ素 (B₄C) と、炭素 (C) のいずれかを用いる。また、前記窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい粉末材料には、タンタル (Ta) の窒化物、炭化物またはホウ化物と、ジルコニウム (Zr) の窒化物、炭化物またはホウ化物と、タングステン (W) の窒化物、炭化物またはホウ化物と、ハフニウム (Hf) の窒化物、炭化物またはホウ化物のいずれかを用いることができる。詳しくは、窒化ケイ素を主成分とする成形体の表面を被覆する被覆粉末は、窒化ケイ素粉末 50 ~ 90 部 (重

量、以下同じ)と、焼結助剤 0.5~10部と、窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料粉末 10~40部とするのが好ましい。

【0009】前記被覆粉末は焼成中の雰囲気気を抑制する。つまり、成形体の表面付近からの焼結助剤の蒸散を抑制するだけでなく、被覆粉末に含まれる焼結助剤が高温で軟化し、窒化ケイ素焼結体の表面の気孔へ充填し、気孔を閉鎖する。したがって、破壊起因ないし破壊起点となる窒化ケイ素焼結体の表面の気孔が消滅し、窒化ケイ素焼結体の強度を実用上十分なものに高める。

【0010】

【実施例】本発明による均質窒化ケイ素焼結体の製造方法について説明する。まず、原料として窒化ケイ素 (Si_3N_4) と、酸化イットリウム (Y_2O_3) と、アルミナ (Al_2O_3) との各粉末を、92:5:3の重量比で混合し、軸プレスにて成形圧力約 6000 kg/cm^2 で寸法 10×15×60mm のブロック状の成形体を作製し、該成形体に脱脂処理を施した。

【0011】次いで、前記原料粉末と同じ成分の粉末すなわち窒化ケイ素 (a) と焼結助剤 (b+c) と、炭化ケイ素 (SiC) などの焼結しにくい粉末 (d) とを、90:10から10:90までの重量比で混合した被覆粉末 (表1参照) を、前記脱脂処理を施した成形体の表面に塗布 (コーティング) して、厚さ約 100~800 μm の被膜ないし被覆層を形成した。次いで、前記被覆層を形成した成形体を、圧力約 9.5 atm 、温度約 1700~1900℃の窒素 (N_2) ガス中にて、約4時間にわたり焼成し、窒化ケイ素焼結体を得た。成形体の前記被覆層は、得られた窒化ケイ素焼結体から簡単に剥離できた。

【0012】得られた窒化ケイ素焼結体について、4点曲げ強度試験 (JIS 1601) を行ない、窒化ケイ素焼結体の表層部の断面を走査電子顕微鏡により写真撮影した。得られた写真から窒化ケイ素焼結体の焼成面から深さ 0~200 μm の表層部断面に含まれる気孔の大きさと直径を測定した。窒化ケイ素焼結体の焼成面から深さ 0~200 μm の表層部断面は、該表層部断面に含まれる気

孔の内径が 5~50 μm であり、200×200 μm の 2 次元的範囲を縦横 20 等分したセル (10×10 μm) に占める気孔面積の平均的割合は 15% 以下であった。

【0013】本発明によれば、表1に示すように、窒化ケイ素の添加量 (a) と、焼結時の雰囲気気を制御する焼結助剤 (b+c) の添加量と、焼結体の表面の気孔を制御する焼結しにくい材料粉末 (d) の添加量とを選定することにより、表層部断面の気孔が少なく、表面の強度

10 が高い均質窒化ケイ素焼結体を得られる。

【0014】本発明による窒化ケイ素焼結体は、表層部断面に占める気孔面積の割合が小さく (15% 以下)、窒化ケイ素焼結体の 4 点曲げ強度は、表1および図1に示すとおりであり、焼結しにくい材料を含む被覆粉末を塗布しなかつた窒化ケイ素焼結体 (比較例) に比べて曲げ強度に優れる。

【0015】

【発明の効果】本発明は上述のように、窒化ケイ素粉末に窒化ケイ素の焼結助剤粉末を添加した混合物から成形体を成形し、窒化ケイ素を主成分とし窒化ケイ素の焼結助剤と窒化ケイ素の焼結温度で焼結しにくい材料とを混合した粉末を前記成形体の表面に被覆して焼結したものであるから、窒化ケイ素の添加量と、焼結時の雰囲気気を制御する焼結助剤の添加量と、焼結体表面の気孔を抑制する焼結しにくい材料の添加量とを選定することにより、表面に気孔が少なく、表面の強度が高い均質窒化ケイ素焼結体を得られる。

【図面の簡単な説明】

30 【図1】本発明に係る均質窒化ケイ素焼結体の被覆粉末に対する焼結助剤の割合と 4 点曲げ強度との関係を表す線図である。

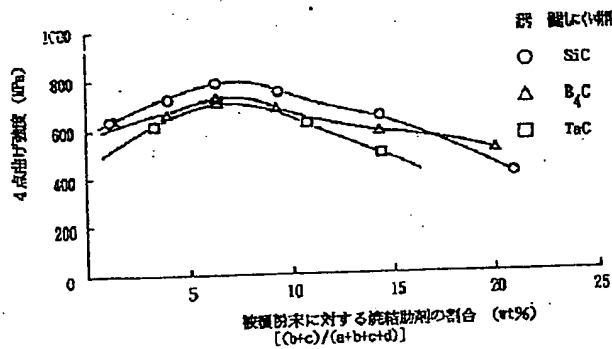
【図2】同被覆粉末におけるアルミナに対する酸化イットリウムの割合と 4 点曲げ強度との関係を表す線図である。

【図3】同被覆粉末に対する焼結しにくい材料の割合と 4 点曲げ強度との関係を表す線図である。

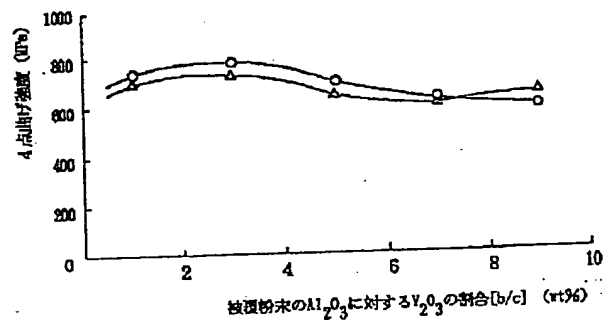
【表1】

試料 No	被覆粉末の成分 (wt%)				被覆層の厚さ (μm)	焼結後の 強度 MPa	気孔率 の割合 (%)
	(a) Si_3N_4	(b) Y_2O_3	(c) Al_2O_3	(d) 焼結 しにくい材料			
1	81	4.5	2.7	SiC 10	100~400	746	8
2	64.4	3.5	2.1	SiC 30	100~400	780	6
3	46	2.5	1.5	SiC 50	100~400	712	10
4	27.6	1.5	0.9	SiC 70	100~400	660	12
5	9.2	0.5	0.3	SiC 90	100~400	640	12
6	81	4.5	2.7	B ₄ C 10	100~500	710	8
7	64.4	3.5	2.1	B ₄ C 30	100~500	736	8
8	46	2.5	1.5	B ₄ C 50	100~500	685	10
9	27.6	1.5	0.9	B ₄ C 70	100~500	646	12
10	9.2	0.5	0.3	B ₄ C 90	100~500	678	13
11	64.4	3.5	2.1	C 30	400~700	592	14
12	64.4	3.5	2.1	TaC 30	100~400	765	7
13	64.4	3.5	2.1	ZrN 30	100~200	654	10
14	64.4	3.5	2.1	VC 30	200~800	635	10
15	64.4	3.5	2.1	HfC 30	100~300	710	8
比較例	(塗布粉末なし)				—	546	16

【図 1】



【図 2】



【図 3】

